

大きな金属単結晶の X 線トポグラフィ 第3報

—リニエジ構造への適用—

X-ray Topography for Metal Crystals (III)

—On Application to Observation of the Lineage Structure—

高 正 植*・片 岡 邦 郎*・一 色 貞 文*

Joungshik KO, Kunio KATAOKA and Sadabumi ISSHIKI

1. ま え が き

融液から成長させた金属および合金の単結晶にしばしば観察される Lineage 構造 (striation) は、いままでに、Sn, Cu, Pb, Ag, Ni, Al などの純金属と Al 合金単結晶について比較的良く検討されている^{1)~3)}。これらの観察法にはマクロ、マイクロエッチ法と X 線ラウエ法他に、分解能の良い Berg-Barrett 法や Schulz 法もあるが、これらはいずれも表面観察のみによるものであり、Berg-Barrett 法と Schulz 法は一度の照射面積が $5 \times 10 \text{mm}^2$ 程度であるので、大きい単結晶の全体を考察するには多くの労を要するものである。

第1報⁴⁾で、広幅長隙ラウエ法は以上のような観察方法より、容易に Lineage 構造を凝固過程として考察しうる手段である例を紹介したが、本報告では、前回と異なった成長条件の試片について、広幅長隙ラウエ法で striation を観察し、従来の方法による striation の性質と比較検討し、この方法の適用範囲を決定する。

2. 実験方法と試片

いずれも第1報と同じである。反射トポグラフィを撮るための配置図は第1報の第1図のフィルムと試片を入れ換えたものと同様であるが、焦点寸法 $0.5 \times 0.5 \text{mm}$ の Cu 対陰極を使用し、試片—フィルムの距離を 80mm にした。また、Al-0.05% V (試片作成時の組成で) の単結晶を追加成長させた。

3. 純アルミニウム単結晶の striation

従来の方法で観察された純金属の striation の性質はつぎのようなものであることが報告されている¹⁾²⁾、1) 成長方向にほぼ平行な縞状組織をなす、2) 隣り合った striation の方位差は $1/5^\circ \sim 5^\circ$ である。3) その方位差は成長が進むにつれて、増加して行く、4) 縞状晶の幅は約 1mm である。5) 一方向への回転の総和は反対方向への回転の総和に等しい。6) 潜伏期間が $1 \sim 3 \text{cm}$ 程度である。成長速度が小さいほど、その期間が長くなる。7) 成長方向は成長速度に大きく依存し、成長速度が大

きいほど、優先成長方向と一致する。8) 高純度の場合には成長が真直ぐでなく、その境界が波形をなし、明確でない。9) 不純物の僅かな ($0.02 \sim 0.1\%$) 添加によって、真直ぐに延び、規則正しい配列をなす。10) 融点直下で長時間、焼鈍しても striation は消滅しないなどである。以上のような striation のおもな性質を念頭に入れて、試片最高温度 800°C 、炉移動速度 12mm/min の条件で成長させた純アルミニウム単結晶の透過トポグラフィ (写真1) から、この結晶の striation を考察する。

試片方向とほぼ平行で、中途から多くの枝分れした回折像をなしているのが (200) 反射像である。枝分れした像の目盛線によって欠けた位置と試片透過像の同じ目盛線の位置が一直線上に乗る。これは (200) 面が試片の成長方向に平行であることを示すもので、前報の (2)⁴⁾ 式から焦点直下の (200) 反射点とその点から 6cm 離れた (200) 反射点での回折角の相異は $2'$ 以下であることが解かる。それゆえ、隣り合った striation の misorientation は回折像の位置とその回折像の対応する試片の位置を知れば容易に測定できる。すなわち、図1のように、striation の回折像 a, b とその回折を起こした試片のフィルム上の対応点との距離を r_1, r_2 とし、 D を試片上面とフィルム間の距離とすると、その方位差 $\Delta\theta$ は

$$\Delta\theta \cong \tan^{-1} \frac{r_2}{2D} \sim \tan^{-1} \frac{r_1}{2D} \quad (6)$$

から求められる。

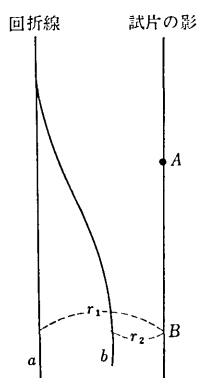


図1 misorientation の測定法

この式を用いて写真1の最大の $\Delta\theta$ を求めると $2^\circ 48'$ となる。もし、隣り合った striation が左右同等の回転をすれば、この2倍の $5^\circ 36'$ の方位差をなすようになるだろうが、そのような事象が起こる確率は非常に小さいものである。しかし、試片全体の striation のうちの一方が一方に、隣り合っていないある他の striation が反対方向に回転している場合を考えれば、一つの試片内での任意の striation 同志の最大方

* 東京大学生産技術研究所 第1部

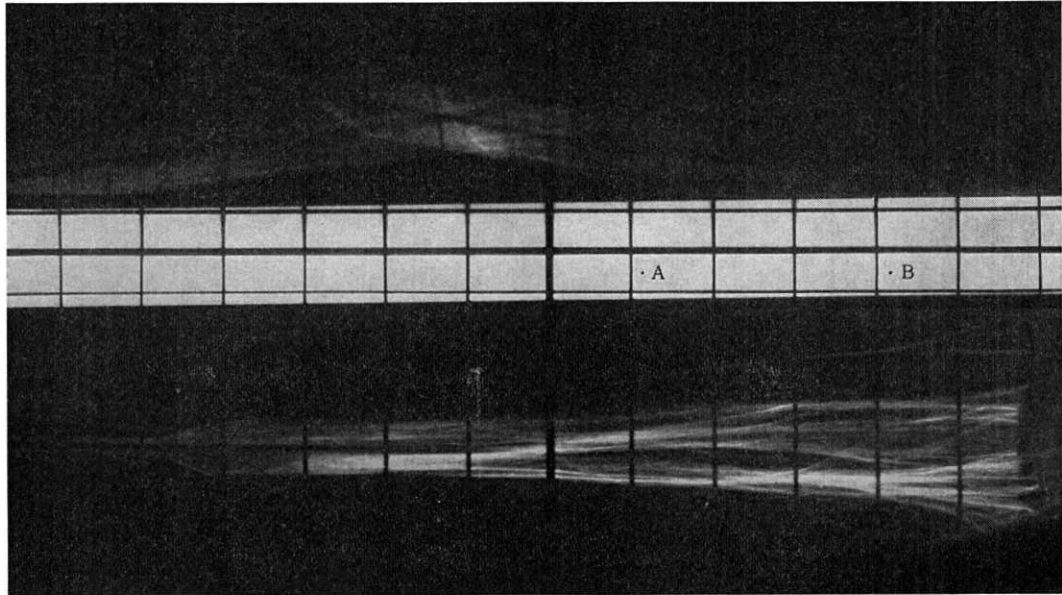


写真 1 純アルミニウム単結晶の透過トポグラフ。(200)反射像が最もはっきりしている。



(a)



(b)

写真 2 反射ラウエ写真

(a)は写真 1 の A 点に, (b)は B 点に対応する試片から

位差は 5° 以上になる可能性がある。この透過トポグラフでの角度測定の精度は使用した装置の焦点の大きさ ($1 \times 1 \text{ mm}$) と、実験配置から r の測定を 0.3 mm まで正確に読めるとすると数分の程度である。したがって、*misorientation* も数分の精度で求められる。

つぎに、写真 1 から第 1 報の写真 3 と異なる点のみを考察してみる。1) *striation* の回折像は直線ではなく、多少波状をなしている。これは一つの *striation* が成長に伴なって一様な回転をするのではなく、単位長さ当りの回転の大きさが場所によって変ることを意味する。これは今まで一つの *striation* が回転をするにしても、隣り合ったものとはその方位差を増すのみで、反対方向へ中途

から逆回転することは観察されていなかったことと全く異なる現象である。2) 単位長さ当り約 1° の回転をなすものがある。3) *striation* の幅の小さいものは試片終端まで継続成長しないで (回折線が途中で終る) 途中から、新しい *striation* として出発し、*misorientation* を大きくして行く、4) 全 *striation* 中の一方向への回転角の総和は、反対方向への回転角の総和と等しくない。5) 一つの *striation* からさらにもう一つの *striation* が分かれ出て、そのお互いの方位差を大きくして行くのが観察される。6) 試片の終端の凝固に際して収縮した部分にも *striation* の継続が認められる。

なお、成長条件を変えて育成した数十本の純アルミニ

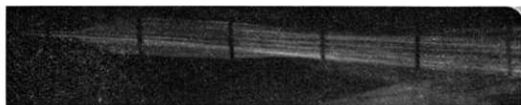
研究速報

ウム単結晶の透過トポグラフ観察から、従来の striation の性質と異なった結果を得た。1) 潜伏期間が 1~3 cm のものは横型の炉移動方式で育成した試片に多く見だされる。2) 縦型炉の場合、試片最高温度 700~800°C、炉移動速度 1 mm/min 以下の条件で、潜伏期間が 5 cm を越えるものが作成試片の 50% に達した。3) striation の幅は 0.1~1 mm で、中には 2 mm になるものもある。4) 一つの試片で striation の発生時期が大きく異なることがあって、2~3 cm 程ずれることがある。5) 一つの試片の中で striation の幅は均一でない。6) striation が多発する場所の近くでは回折濃度が增大するのが観察される。7) 炉移動速度が大きくなるにしたがって、単位長さ当りの misorientation が大きくなり、その匂配もより不規則になる。

なお、参考のため、写真 1 の試片の透過像 A, B に対応する点の反射ラウエ写真を写真 2 の a, b に示した。これらの写真を数枚から数十枚並べて、striation の発達過程を推測するとしても、写真 1 に示した 1 枚の透過トポグラフに遠く及ばない。

4. アルミニウム合金の striation

写真 3 の a, b に Al-0.05%V 単結晶の透過トポグラフと反射トポグラフを示した。これらの写真よりこの試片の striation は直線状をなし、お互いの misorientation は数分から十数分程度であることが解るが中には数十分の方位差を持つものが観察される。このような striation は純アルミニウムの striation と異なって、徐々に方位差を大きくして発達した striation でなくて、stray crystal のような性質を持つものである。また、試片の先端部すなわち、結晶成長の出発点から striation が存在することが認められる。アルミニウム合金の striation は一般に、マクロエッチ法で板状晶が規則正しく



(a)



(b)

写真 3 Al-0.05%V 単結晶のトポグラフ
(a)は透過法によるもので(b)は反射法による。(b)の濃度の大きい所は Cu の特性線 CuK_α によるものである

並んでいるように見えるものである。

5. まとめ

以上述べたように、著者らが開発した広幅長隙ラウエ法をアルミニウム合金単結晶の Lineage 構造の観察に適用して、従来の観察法で得られなかった多くの知見を得て、その適用範囲を決定できた。

1) 透過トポグラフ 1 枚だけから、試片の先端部での多結晶から単結晶に変わる場所と、その結晶が成長するにつれて、ある潜伏期間を経たのち、striation が発生し、その striation がお互いの misorientation を大きくしてゆく凝固過程を容易に観察できる。

2) 今までの観察法は表面観察のみであったが、透過トポグラフは試片内部状態を考察しうる。

3) ピンホールラウエ法、Berg-Barrett 法、Schulz 法などは試片の局所的な観察であったが、この方法では一度に大きな金属単結晶の凝固過程と結晶性を推測できる。

4) 透過法、反射法、Section 法を並用すれば立体的に結晶の凝固過程を検討できる。

5) 比較的厚い金属試片 (Al 20 mm, Fe, Cu, 2 mm) に適用できる。

6) 大きい試片に適用できる。X線照射野の中に入る大きさの試片であれば良い。

7) 工業用 X線透過法装置があれば、手製の付属装置である程度の実験が可能である。

8) 将来、結晶の成長過程の動的観察がイメージインテンシファイアとテレビジョンを結合して行われるだろう。

おわりに、この研究は昭和 47 年度文部省科学研究費補助金一般研究 B により試作した発散 X線トポグラフ装置を使用して行われたもので、装置の開発を担当し、本研究に多くの助言を与えられた本間慎一助教授に深く謝意を表するものである。(1973 年 8 月 25 日受理)

参考文献

- 1) E. Teghtsoonian and B. Chalmers: *Canad. J. Phys.*, 29 (1951), 370; 30 (1952), 388.
- 2) D. T. J. Hurle: *Progress in Metals Science* Vol. 10, p. 78 Butterworths Scientific Publication, Ltd (1961).
- 3) 高, 片岡, 一色, 金属学会昭和 46 年秋期大会予稿(1971).
- 4) 高, 片岡, 一色, 生産研究 Vol. 25 334 (1973).
- 5) 高, 片岡, 一色, 生産研究 Vol. 25 403 (1973).